

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005年6月9日 (09.06.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/052215 A1

- (51) 国際特許分類: C25B 11/04, 1/02, C01B 3/56, H01M 8/02, 4/86, 8/12
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/017100
- (22) 国際出願日: 2004年11月17日 (17.11.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2003-393252
2003年11月25日 (25.11.2003) JP

- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松本 広重 (MATSUMOTO, Hiroshige) [JP/JP]; 〒8128581 福岡県福岡市東区箱崎6-10-1 九州大学大学院工学研究院内 Fukuoka (JP). 高村 仁 (TAKAMURA, Hitoshi) [JP/JP]; 〒9808579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉6-2 東北大学大学院工学研究科内 Miyagi (JP). 水崎 純一郎 (MIZUSAKI, Junichiro) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平2-1-1 東北大学多元物質科学研究所内 Miyagi (JP). 川田 達也 (KAWADA, Tatsuya) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平2-1-1 東北大学多元物質科学研究所内 Miyagi (JP). 八代 圭司 (YASHIRO, Keiji) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平2-1-1 東北大学多元物質科学研究所内 Miyagi (JP).

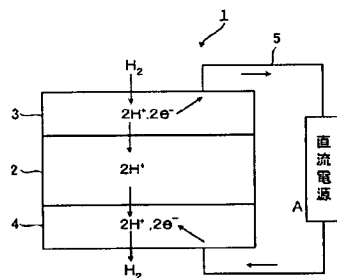
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 独立行政法人科学技術振興機構 (JAPAN SCIENCE & TECHNOLOGY AGENCY) [JP/JP]; 〒3320012 埼玉県川口市本町4-1-8 Saitama (JP).

- (74) 代理人: 杉原 鉄郎 (SUGIHARA, Tetsuo); 〒1020084 東京都千代田区二番町1-2番町ハイム1007 Tokyo (JP).

[続葉有]

(54) Title: ELECTRODE FOR ELECTROCHEMICAL CELL AND ELECTROCHEMICAL CELL

(54) 発明の名称: 電気化学セル用電極及び電気化学セル



A...DIRECT-CURRENT POWER SUPPLY

(57) Abstract: Electrodes for an electrochemical cell comprising a proton conductive electrolyte are characterized in that a solid substance having hydrogen permeability is used for at least one of the anode and cathode. Also disclosed is an electrolysis cell using such electrodes. By forming an electrode using a hydrogen permeable solid substance such as a perovskite composite conductive ceramic or a hydrogen storage alloy, the electrode overvoltage can be reduced.

(57) 要約:

本発明は、プロトン導電性電解質を備えた電気化学セル用の電極であって、アノード及びカソードの少なくとも一方が、水素透過性を有する固体を用いたものであることを特徴とする電極、及びその電極を備えた電解セルである。

水素透過性を有する固体である、ペロブスカイト型混合導電性セラミックスや水素吸蔵合金を用いて電極を構成することによって、電極過電圧を小さくすることができる。

WO 2005/052215 A1



(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

電気化学セル用電極及び電気化学セル

技術分野

- [0001] 本発明はプロトン導電性電解質を備えた電気化学セル用電極及び電気化学セルに係り、特に高温型プロトン導電性電解質に適した電極及び電気化学セルに関する。

背景技術

- [0002] 近年、地球環境保全及び省エネルギーの見地から、燃料電池等のエネルギー源として水素が脚光を浴びている。これに伴い、水素製造に不可欠な技術である水素分離や燃料電池のための有用な電気化学デバイスとして、プロトン導電性電解質の研究が広く進められていることは周知のとおりである。
- [0003] プロトン導電性電解質とは、水素の陽イオンであるプロトンが可動イオン種として存在する電解質材料である。可動イオン種であるプロトンは、電圧の印加によりその中を動くことができ、従って、プロトン導電性電解質にガス電極を取り付けたもの（以下、プロトン導電体セルと呼ぶ）に直流電流を通じれば、電極が接するガスの種類に応じて水素分離や水素燃料電池発電を行うことができる。
- [0004] プロトン導電体セルにおいて、ガス電極は水素の関わる電極反応をおこす役割をもつ。かかる電極反応の駆動力として必要な電圧は電極過電圧とよばれ、この値が小さいほどプロトン導電体セルは効率の高いデバイスとして働く。従って、高性能のガス電極を実現するための電極過電圧の小さな材料が求められている。
- [0005] 従来、ガス電極として用いられてきたものには、多孔質構造の電子伝導性材料、あるいは、電子導電性材料と電解質のサーメットがあるが、これらはもっぱら電子の授受を電極の役割と考えた上で設計されたものであった。たとえば、ある種の高温型プロトン導電体をプロトン導電性電解質として用いた水素分離装置に関する技術が提案されている（例えば、Hiroyasu Iwahara, Solid State Ionics, 125, 271-278 (1999)）。
非特許文献1: Hiroyasu Iwahara, Solid State Ionics, 125, 271-278 (1999)
- [0006] この技術は、電極として多孔質白金電極が用いたものであるが、この場合、白金が

電子伝導性材料として用いられていることは明らかである。このように、電子の授受のみをその役割とする電極をプロトン導電性電解質に用いた場合、電解質によっては水素の関わる電極反応の速度が遅く、大きな電極過電圧を生じる一言い換えれば電極反応を起こすのに大きな電気エネルギーが必要であることが問題であった。実際に、後述の実施例中に比較例として示すように、ジルコニウム(Zr)を含むペロブスカイト型構造のプロトン導電体に、従来の多孔質白金電極を用いた場合には、きわめて悪い電極特性が示される。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0007] 本発明は、上記問題を解決するためのものであって、電極過電圧が小さいという特性を有するプロトン導電性電解質を備えた電気化学セル用電極及びこれを用いた電気化学セルを提供するものである。

課題を解決するための手段

- [0008] 発明者は、鋭意研究の結果、電極に電子の授受に加えてプロトン、あるいは、水素を内包する機能を与えることにより電極過電圧を小さくすることができることを見出し、試験により確認して以下の発明を完成した。すなわち、
- [0009] (1)プロトン導電性電解質を備えた電気化学セル用の電極であって、アノード極とカソード極のいずれか一方又は両方に水素透過性を有する固体を用いて成ることを特徴とする電極。
- [0010] ガス電極における反応は、ガス中の水素あるいは含水素化合物およびプロトンおよび電子の間で生じる反応であり、電極反応はこれらの三者が共存する場所において進行する。これら三者は、通常、それぞれ気相および電解質相および電子伝導相に分かれて存在することから、このような反応場は三相界面と呼ばれる。
- [0011] 三相界面とは、まずその構成要素から考えれば、一次元的にしか広がりを持たないはずであるが、電極反応の起こりうる反応場は、少なくとも二次元的な広がりを持たなければならない。従って、実際には電極反応が起こる反応場は、三相界面近傍において気相と電子伝導相又は／および気相と電解質相の界面にある程度の広がりをもっていると考えられている。すなわち、前者の組み合わせにおいては、電子伝導相の

気相との界面に水素にまつわる何らかの反応中間体が存在し、これを介して電極反応が進行しうる。また、後者においては、本来電子伝導性を持たない電解質相が、気相との界面において電子伝導相との近傍で局所的にある程度の電子伝導性を生じることにより、電極反応が生じていると考えることができる。

- [0012] ガス電極の性能(すなわち、電極過電圧の大きさ)を支配する因子は、いわゆる三相界面の量(面積)と、ある量の三相界面で生じる電極反応の円滑さ(触媒特性)である。したがって、ガス電極の性能は、三相界面の増大または／および単位三相界面あたりの触媒特性の増大によって達成されるはずである。
- [0013] 本発明は、アノード極とカソード極のいずれか一方又は両方に「水素透過性を有する固体」を用いることにより、電極に電子の授受に加えてプロトン、あるいは、水素を内包する機能を与えた。これにより、電極と気相との界面を電極反応場として働かせて電極過電圧を小さくすることを実現したものである。
- [0014] (2)前記プロトン導電性電解質は、一般式 AB_xO_{3-d} ($0.8 \leq x \leq 1.2$)で示されるペロブスカイト型構造を有し、かつ、Bサイトの元素が、ジルコニウム(Zr)を含むものであることを特徴とする(1)に記載の電極。
- [0015] 本発明の電極は、基本的にプロトン導電性電解質の種類を問わず用いることができるが、特に、Bサイトの元素がジルコニウム(Zr)を含むペロブスカイト型構造の電解質に対して有効である。
- [0016] 高温型プロトン導電体は、BサイトをCeとしたセレートとZrを用いたジルコネートに大別される。一般に、セレート系電解質は、導電率が高いが化学的安定性と機械的強度に劣る。これに対してジルコネート系電解質は、導電率ではセレートに及ばないが、安定性と強度に優れるという特長を持つ。BサイトにZrを導入することは、電解質の抵抗の増大につながるものの、機械的強度が高いため電解質を薄くすることができるという特徴を有する。
- [0017] (3)上記(2)において、前記Bサイトの元素が、20mol%以上のジルコニウム(Zr)を含んで成ることを特徴とする電極。
- [0018] 前述の通り、プロトン導電性電解質の化学的安定性はジルコニウムの含有量とともに向上し、特にAサイトにバリウム(Ba)を含むプロトン導電性電解質においては、ジ

ルコニウム含有量を20mol%以上とすることにより、100%の濃度の炭酸ガスにも反応せず安定であることが知られている。

[0019] (4)前記水素透過性を有する固体が、プロトン-電子混合導電体であることを特徴とする(1)乃至(3)に記載の電極。

[0020] 「水素透過性を有する固体」として、「プロトン-電子混合導電体」を用いることができる。プロトン-電子混合導電体を用いることにより、電極に電子の授受に加えてプロトンを内包する機能を与えることが可能となる。

[0021] 図1は、電気化学セル1の電極としてプロトン-電子混合導電体を用いた場合の電極反応を概念的に示したものである。アノード極3における反応を考えると、まず、気相と電極の界面において以下の反応が起こる。



この時点で、生じたプロトン(H^+)および電子(e^-)はアノード極3中に存在する。続いてプロトンは電解質2に移動し、電子がリード線5に移動することで電極反応が完結する。カソード極4では、アノード極3と逆の反応が進行し、水素ガスが生成する。このような作用により、電極と気相との界面を電極反応場として働かせることができ、電極過電圧を小さくすることが可能となる。

[0023] (5)前記プロトン-電子混合導電体が、前記ペロブスカイト型構造を有するプロトン-電子混合導電性セラミックスであることを特徴とする(4)に記載の電極。

[0024] 電極と電解質には当然ながら異なる材質が用いられ、その組み合わせによっては、熱膨張率などの物理的性質の違いにより剥離等の問題を生じ、あるいは、化学的性質、すなわち、相手との反応性や酸化還元特性の違いなど要因により、電極性能の劣化が生じることが多い。このような電極と電解質の不適合性は、両者の構造を同じくすることで最小にできることが経験的に多い。ペロブスカイト型構造を有する電解質に対して同構造を有する電極を用いることは、極めて有効な手段となる。

[0025] (6)前記水素透過性を有する固体が、水素吸蔵合金であることを特徴とする上記(1)乃至(3)に記載の電極。

[0026] 「水素透過性を有する固体」として、「水素吸蔵合金」を用いることができる。水素吸蔵合金を用いることにより、電極に電子の授受に加えて原子状水素を内包する機能

を与えることが可能となる。

[0027] 図2は、電気化学セル20の電極として水素吸蔵合金を用いた場合の電極反応を概念的に示したものである。アノード極23における反応を考えると、まず、気相と電極の界面において以下の反応が起こる。



この時点で、水素(H)はアノード極23中に存在する(原子状で存在すると考えられる)。生じた水素は、アノード極23と電解質22との界面で以下の反応を生じる。



生じたプロトンは電解質22に移動し、電子がリード線25に移動することにより電極反応が完結する。カソード極24ではアノード極23と逆の反応が進行し、水素ガスが生成する。電極に電子の授受に加えてプロトン、あるいは、水素を内包する機能を与えた。このような作用により、電極と気相との界面を電極反応場として働かせることができ、電極過電圧を小さくすることが可能となる。

[0030] (7)前記水素吸蔵合金が、パラジウム(Pd)を含む合金であることを特徴とする(6)に記載の電極。

[0031] パラジウムが水素吸蔵性をもつことは周知の通りであるが、同時に、パラジウムは貴金属であり、すなわち、極めて酸化されにくい安定な金属であることから、安定な電極特性が得られる。

[0032] (8)前記水素吸蔵合金が、パラジウム(Pd)を10%以上含む合金であることを特徴とする(7)に記載の電極。

[0033] 前述したパラジウムの水素吸蔵性と安定性は、前記の割合でパラジウムを含む合金においても実現でき、この場合にも安定な電極特性が得られる。

[0034] (9)前記水素透過性を有する固体が、プロトン-電子混合導電体と水素吸蔵合金の混合物であることを特徴とする請求項1乃至3に記載の電極。

[0035] 「水素透過性を有する固体」として、「プロトン-電子混合導電体」と「水素吸蔵合金」の混合物を用いることができる。両者は、上述のように電極に電子の授受に加えてプロトン又は水素を内包する機能を有するため、これらの混合物も同様の機能を有する。

- [0036] 両者の混合比は、プロトン導電性電解質の種類に応じて適当に選択することができる。
- [0037] (10) 上記(9)において、前記プロトン-電子混合導電体が前記ペロブスカイト型構造を有するプロトン-電子混合導電性セラミックスであり、かつ、前記水素吸蔵合金がパラジウム(Pd)を含む合金であることを特徴とする電極。
- [0038] (11) 上記(1)乃至(10)にそれぞれ記載のプロトン導電性電解質及び電極を備えたことを特徴とする電気化学セル。

発明の効果

- [0039] 上記各発明による電極をプロトン導電性電解質と組み合わせて用いることにより、電極過電圧が小さな電気化学セルを実現することが可能となった。

発明を実施するための最良の形態

- [0040] 以下、本発明の実施例について具体的に説明する。

実施例 1

- [0041] 電極にプロトン-電子混合導電性セラミックスを用いたプロトン導電体セルにより水素のポンピングを行い、水素分離性能を評価した。図3に性能評価装置の概要を示す。
- [0042] 電解質として、 $\text{SrZr}_{0.9}\text{Y}_{0.1}\text{O}_{3-a}$ の組成(aは酸素欠損の量を表す)を有するプロトン導電性セラミックスを用いた。電解質形状はディスク状(円盤状)であり、直径は約13.5 mm、厚さは0.5 mmである。このディスク状電解質31の両面中央に、直径8 mmの円状のプロトン-電子混合導電性セラミックス($\text{SrZr}_{0.85}\text{Y}_{0.1}\text{Ru}_{0.05}\text{O}_{3-a}$)を、厚さ約0.2〜0.5ミクロンにてパルスレーザー堆積法(PLD法)により取り付け、アノード極32およびカソード極33を形成した。アノード極32およびカソード極33は、集電用の白金ネット及び白金ペースト(いずれも不図示)を介してリード線38a、38bに接続されている。ディスク状電解質31の外周には、参照極として白金電極(図示せず)を取り付けた。このようにして電解質31及びアノード極32、カソード極33よりなる電気化学セルを構成した。なお、参照極は、アノード極32およびカソード極33の電位を測定するための基準として設けたものであり、プロトン導電体セルの電気化学的機能に直接影響を与えるものではない。

電気化学セル34を、リング状のシール部材39を介してセラミックス管36、37で上下から挟み、アノード室36a及びカソード室37aを構成した。なお、セラミックス管36、37は、それぞれガス導入管36b、37b及びガス排出口36c、37cを備えている。さらに、

- [0043] 電気化学セル34を電気炉35に入れ、800℃に維持して以下に示す水素のポンピング試験を行った。アノード室36aに純水素を、カソード室37aに1%水素を含むアルゴンガスを、それぞれ30mL/minのガス流速にて導入した。これらのガスは、電解質31の還元を防ぐ目的で17℃の飽和水蒸気(水蒸気分圧は約1900 Pa)にて湿潤させた。アノードガスはポンピングするための水素を電気化学セルに供給するものであり、カソードガスは、水素のポンピングによりカソード室に発生する水素をスweepするものである。なお、カソードスweepガス中に1%の濃度で水素が混入されているのは、電位測定の都合によるものである。
- [0044] 以上のようにガスを導入した状態で、リード線38a、38bに直流電源を接続し、アノード極32からカソード極33に向かって所定の電流を通電した。通電によりアノード室36aからカソード室37aにポンプされる水素のポンプ速度、すなわちカソード極33における水素発生速度は、カソードガス排出口37cにおけるガス中の水素濃度をガスクロマトグラフで定量することにより求めた。
- [0045] アノード極32およびカソード極33の電極特性は、電流遮断法(カレントインタラプト法)により測定した。その測定手順は以下の通りである。開回路条件(電流を流していない状態)および所定の電流を通電した状態でのアノード極32およびカソード極33の参照極に対する電位を測定した。各電極の電位の通電時と開回路時との差から、電流遮断法により測定した電解質抵抗による過電圧(オーム損)を差し引くことによりアノード過電圧およびカソード過電圧を求めた。
- [0046] 評価結果を図4、図5および図6に示す。
- [0047] 図4は、電極にプロトン-電子混合導電性セラミックスを用いた場合のアノード極の過電圧を、同条件において電極として従来の多孔質白金電極を用いたときの特性と比較したものである。また、図5は、同様にカソード極の過電圧を比較したものである。両図において明らかなように、当該プロトン-電子混合導電性セラミックス電極は、

従来の多孔質白金電極に比較して低い過電圧を示すことが分かる。

- [0048] 図6は、両電極を用いた場合の水素発生速度を、電流密度に対してプロットする形で比較したものである。図中に破線で示した理論水素発生速度は、ファラデーの法則により計算されるものであって、通電した電流が全て水素のポンピングに利用されたときの水素発生速度である。本実施例においてプロトン導電性電解質として用いた $\text{SrZr}_{0.9}\text{Y}_{0.1}\text{O}_{3-\alpha}$ なる電解質は、電極の性能に応じて限られた電流密度でしか水素をポンプできず、それ以上の電流を印加した場合には水素のポンピングには寄与しない電子伝導による電流が電解質中を電流が流れる。このような理由により、従来の多孔質白金電極を用いた場合には、 13 mA/cm^2 の電流密度においてすでに水素発生速度の理論値からの解離が始まる。これに対してプロトン-電子混合導電性セラミックス電極を用いた場合には、図4および図5で示したとおりに電極性能が改善されたことにもなつて、 16 mA/cm^2 の電流密度においても水素発生速度の理論値と実測値の一致が見られている。

- [0049] 以上の結果から明らかなように従来電極に対するプロトン-電子混合導電性セラミックス電極の優位性が示された。

実施例 2

- [0050] 次に、実施例1と同様の装置を用いて、水素吸蔵合金電極を用いたときの水素分離性能を評価した。実施例1と異なる点は、ガス電極として、ディスク状電解質の両面中央に直径0.8 mmの円状の水素吸蔵性を有するパラジウムを用いたことである。パラジウムを、厚さ約1ミクロンにてスパッタ法により取り付け、アノード極32およびカソード極33を形成した。その他の装置構成及び評価方法は実施例1と同一であるので、装置構成の説明を省略する。

- [0051] 評価結果を図7、図8および図9に示す。

- [0052] 図7は、電極にパラジウムを用いた場合のアノード極の過電圧を、同条件において電極として従来の多孔質白金電極を用いたときの特性と比較したものである。また、図8は同様にカソード極の過電圧を比較したものである。両図において明らかなように、当該プロトン-電子混合導電性セラミックス電極は、従来の多孔質白金電極に比較して低い過電圧を示すことが分かる。

[0053] 図9は、両電極を用いた場合の水素発生速度を電流密度に対してプロットする形で比較したものである。図中に破線で示した理論水素発生速度は第一実施例に同じである。従来の多孔質白金電極を用いた場合には第一実施例に示したように、13 mA/cm²の電流密度においてすでに水素発生速度の理論値からの解離が始まるが、パラジウム電極を用いた場合には、図7および図8で示したとおりに電極性能が改善されたこととともなう、180 mA/cm²の電流密度においても水素発生速度の理論値と実測値の一致が見られている。

[0054] 以上の結果より、水素吸蔵合金を用いた電極の優位性が示された。

産業上の利用可能性

[0055] 本発明は、水素製造のための水素分離や燃料電池に用いる電気化学デバイスとして、広く利用可能である。

図面の簡単な説明

[0056] [図1]プロトン導電性電解質用電極として、水素吸蔵合金プロトン-電子混合導電体を用いたときの電極反応を概念的に示す図である。

[図2]プロトン導電性電解質用電極として、水素吸蔵合金を用いたときの電極反応を概念的に示す図である。

[図3]第一実施例の評価装置を示す図である。

[図4]実施例1による水素分離性能評価結果においてアノード過電圧を示すグラフである。

[図5]実施例1による水素分離性能評価結果においてカソード過電圧を示すグラフである。

[図6]実施例1による水素分離性能評価結果において水素発生速度を示すグラフである。

[図7]実施例2による水素分離性能評価結果においてアノード過電圧を示すグラフである。

[図8]実施例2による水素分離性能評価結果においてカソード過電圧を示すグラフである。

[図9]実施例2による水素分離性能評価結果において水素発生速度を示すグラフで

ある。

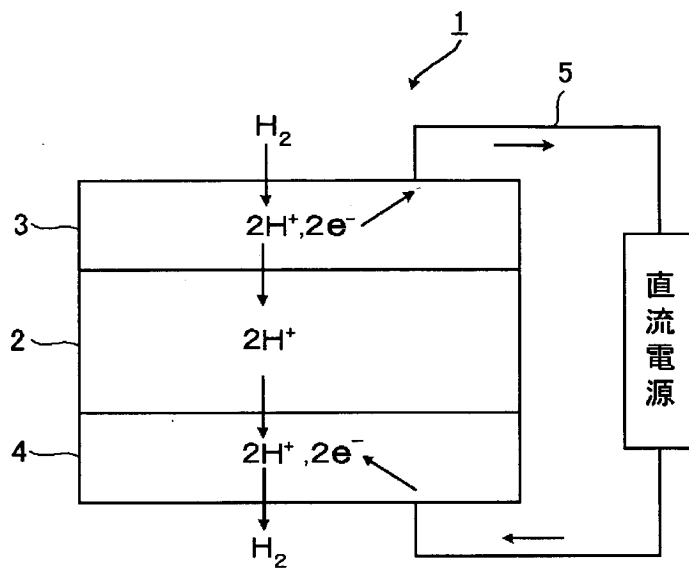
符号の説明

- [0057] 1、20、34…… 電気化学セル
2、22、31…… 電解質
3、23、32…… アノード極
4、24、33…… カソード極
35 …… 電気炉
36a…… アノード室
36b…… ガス導入管
37a…… カソード室
37c…… カソードガス排出口

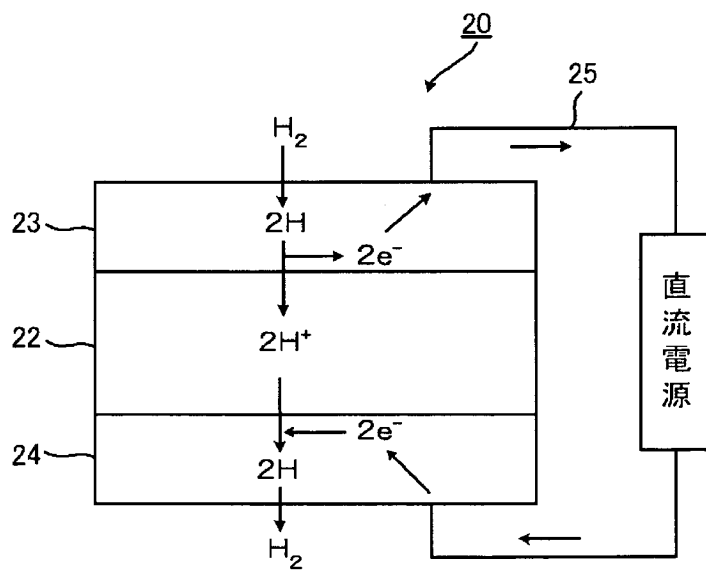
請求の範囲

- [1] プロトン導電性電解質を備えた電気化学セル用の電極であって、アノード極とカソード極のいずれか一方又は両方に水素透過性を有する固体を用いて成ることを特徴とする電極。
- [2] 前記プロトン導電性電解質は、一般式 AB_xO_{3-d} ($0.8 \leq x \leq 1.2$ 、 d は酸素の形式値3からのずれを表す)で示されるペロブスカイト型構造を有し、かつ、Bサイトの元素がジルコニウム(Zr)を含むものであることを特徴とする請求項1に記載の電極。
- [3] 請求項2において、ジルコニウム(Zr)含有率が、20mol%以上であることを特徴とする電極。
- [4] 前記水素透過性を有する固体が、プロトン-電子混合導電体であることを特徴とする請求項1乃至3に記載の電極。
- [5] 前記プロトン-電子混合導電体が、前記ペロブスカイト型構造を有するプロトン-電子混合導電性セラミックスであることを特徴とする請求項4に記載の電極。
- [6] 前記水素透過性を有する固体が、水素吸蔵合金であることを特徴とする請求項1乃至3に記載の電極。
- [7] 前記水素吸蔵合金が、パラジウム(Pd)を含む合金であることを特徴とする請求項6に記載の電極。
- [8] 前記水素吸蔵合金が、パラジウム(Pd)を10%以上含む合金であることを特徴とする請求項7に記載の電極。
- [9] 前記水素透過性を有する固体が、プロトン-電子混合導電体と水素吸蔵合金の混合物であることを特徴とする請求項1乃至3に記載の電極。
- [10] 請求項9において、前記プロトン-電子混合導電体が前記ペロブスカイト型構造を有するプロトン-電子混合導電性セラミックスであり、かつ、前記水素吸蔵合金がパラジウム(Pd)を含む合金であることを特徴とする電極。
- [11] 請求項1乃至10にそれぞれ記載のプロトン導電性電解質及び電極を備えたことを特徴とする電気化学セル。

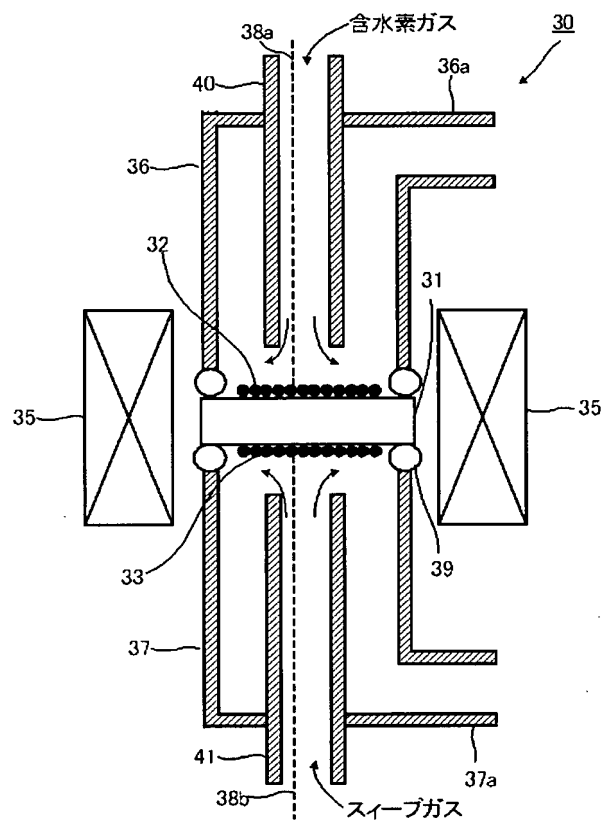
[図1]



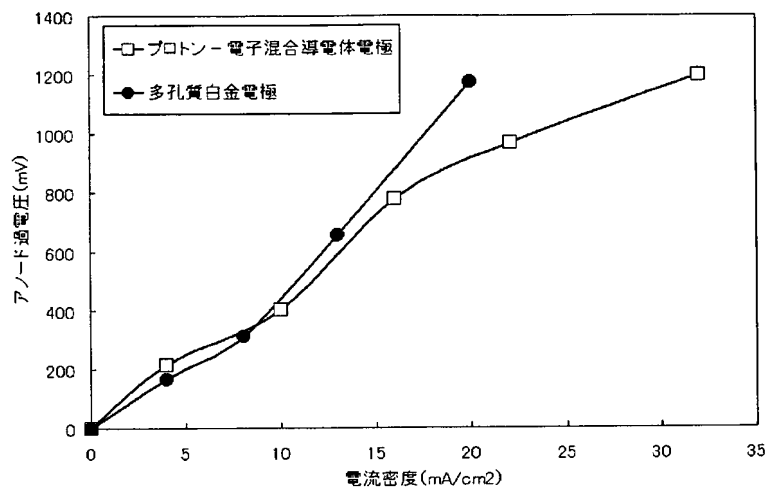
[図2]



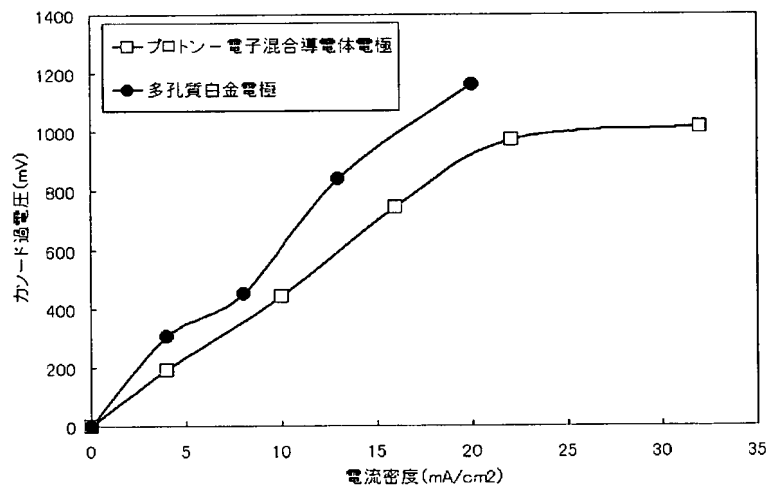
[図3]



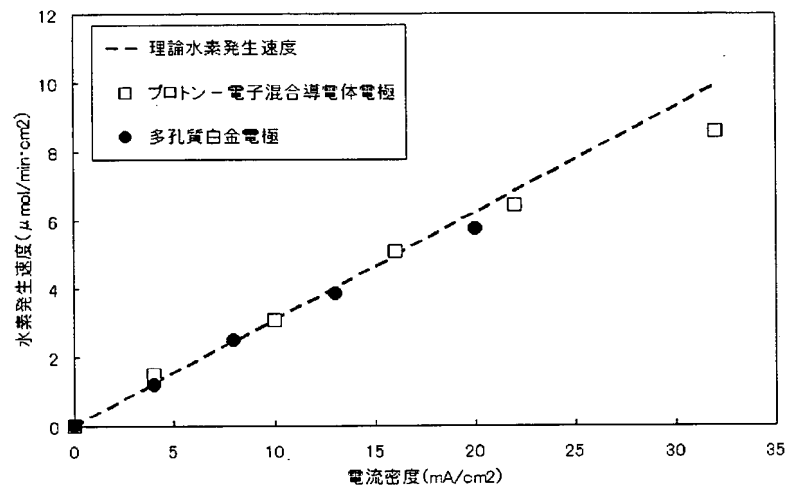
[図4]



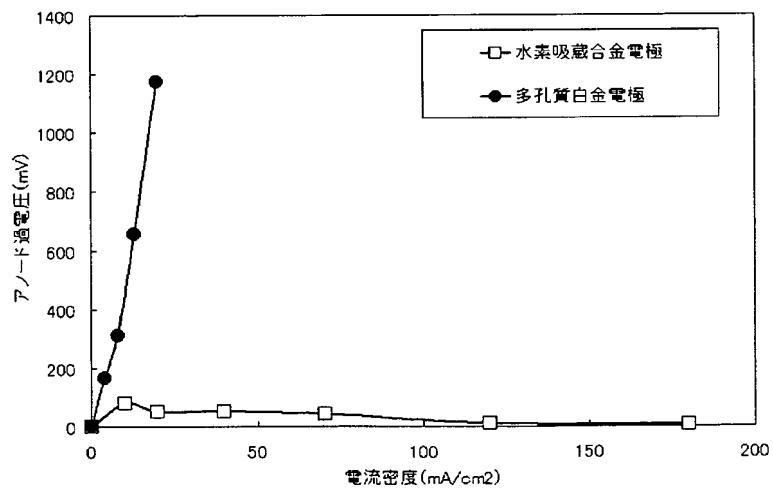
[図5]



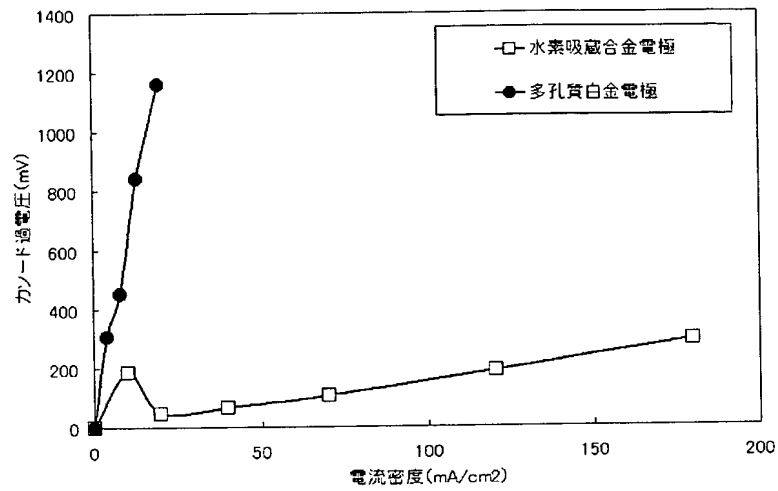
[図6]



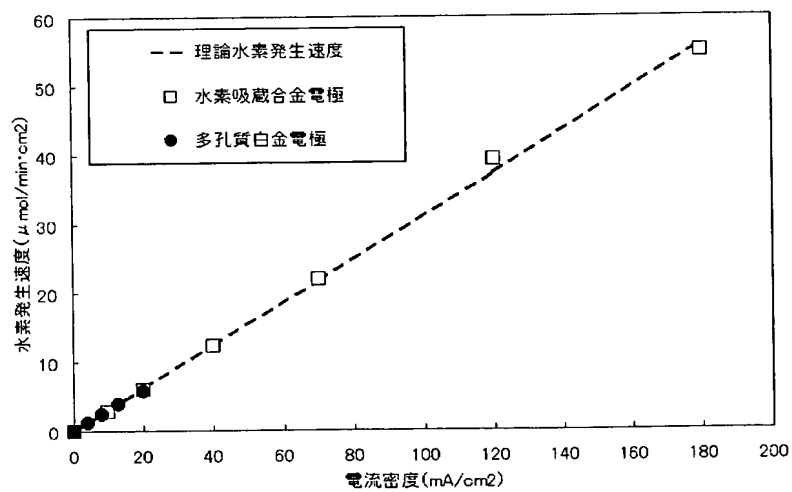
[図7]



[図8]



[図9]



国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2004/017100

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C25B11/04, C25B1/02, C01B3/56, H01M8/02, H01M4/86, H01M8/12

5, 2, 8

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C25B11/04, C25B1/02, C01B3/56, H01M8/02, H01M4/86, H01M8/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 9-52764 A (株式会社豊田中央研究所) 1997. 02. 25, 請求項1、段落【0025】 - 【0028】、図2 (ファミリーなし)	1-4, 11
Y	J P 7-249412 A (三菱重工業株式会社) 1995. 09. 26, 段落【0003】、【0010】 (ファミリーなし)	1-4, 11
A	J P 3039457 U (斉東 安洋) 1997. 04. 30, 全文, (ファミリーなし)	1-11

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07. 12. 2004

国際調査報告の発送日

21.12.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中澤 登

4E

3548

電話番号 03-3581-1101 内線 3423